

## (12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2004年5月27日 (27.05.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/044108 A1

(51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C10M 143/04, 169/04  
// C08F 210/16, (C10M 169/04, 101:02, 107:02, 143:04),  
C10N 20:00, 20:02, 20:04, 30:02, 40:25

Chiba (JP). 川崎 雅昭 (KAWASAKI,Masaaki) [JP/JP];  
〒299-0108 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 池田聰 (IKEDA,Satoshi) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内 Chiba (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/014311

(74) 代理人: 鈴木 俊一郎 (SUZUKI,Shunichiro); 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁目13番6号五反田山崎ビル6階 鈴木国際特許事務所 Tokyo (JP).

(22) 国際出願日: 2003年11月11日 (11.11.2003)

日本語

(81) 指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(84) 指定国(広域): ARIPO 特許 (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(30) 優先権データ:  
特願 2002-327750

2002年11月12日 (12.11.2002) JP

特願2002-352240 2002年12月4日 (04.12.2002) JP

特願2002-353129 2002年12月4日 (04.12.2002) JP

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドスノート」を参照。

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 三井化

学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP]; 〒105-7117 東京都港区東新橋一丁目5番2号 Tokyo (JP). ザルブリゾルコーポレーション (THE LUBRIZOL CORPORATION) [US/US]; 44092-2298 オハイオ州 ウイクリフレークランド ブールバード 29400 OH (US).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 金重 良輔

(KANESHIGE,Ryousuke) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県

市原市千種海岸3 三井化学株式会社内 Chiba (JP).

岡田 圭司 (OKADA,Keiji) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉

県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内

(54) Title: LUBRICATING OIL COMPOSITION AND INTERNAL COMBUSTION ENGINE OIL

(54) 発明の名称: 潤滑油組成物および内燃機関用潤滑油

WO 2004/044108 A1

(57) Abstract: The invention aims at providing a lubricating oil composition which exhibits excellent low-temperature viscosity characteristics when used as automobile or industrial engine oil, gear oil, shock absorber oil, hydraulic oil, or the like, and an internal combustion engine oil comprising the composition. The lubricating oil composition comprises a lube base oil (A) which exhibits a kinematic viscosity of 1 to 50mm<sup>2</sup>/s at 100°C and a viscosity index of 80 or above, an ethylene-propylene copolymer (B) having the following characteristics (B1) to (B4), and, if necessary, a pour-point depressant (C): (B1) the ethylene content lies within the range of 30 to 75 % by weight, (B2) the limiting viscosity [ $\eta$ ] lies within the range of 1.3 to 2.0dl/g, (B3) the Mw/Mn ratio is 2.4 or below, and (B4) the melting point is 30°C or below as determined by DSC.

(57) 要約: 本発明は自動車用・産業用エンジン油、ギヤー油、ショックアブソーバー油、油圧油などとして低温粘度特性に優れた潤滑油組成物および該組成物からなる内燃機関用潤滑油を提供することを目的とするものであって、潤滑油組成物は、100°Cにおける動粘度が1~50mm<sup>2</sup>/sで、かつ粘度指数が80以上の潤滑油基剤(A)と、下記(B1)~(B4)の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体(B)と、必要に応じて流動点降下剤(C)とかなる。(B1) エチレン含量が30~75重量%の範囲にある(B2) 極限粘度[ $\eta$ ]が1.3~2.0dl/gの範囲にある(B3) Mw/Mnが2.4以下である(B4) DSCで測定した融点が30°C以下である。

## 明細書

## 潤滑油組成物および内燃機関用潤滑油

## 技術分野

本発明は、特定のエチレン・プロピレン共重体を潤滑油粘度改良剤として含有する潤滑油組成物および該組成物を含有する内燃機関用潤滑油に関する。

## 背景技術

石油製品は一般に温度が変わると粘度が大きく変化する、いわゆる粘度の温度依存性を有している。例えば、自動車等に用いられる潤滑油等では粘度の温度依存性が小さいことが好ましい。そこで潤滑油には、粘度の温度依存性を小さくする目的で、潤滑油基剤に可溶な、ある種のポリマーが粘度指数向上剤として用いられている。近年では、このような粘度指数向上剤としてエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体が広く用いられており、潤滑油の性能を更に改善するためエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体について種々の改良がなされている（国際公開第W000/34420号パンフレット参照）。

粘度指数向上剤は、一般に潤滑油が高温時に適正な粘度を保持するために用いられるが、最近では、エンジン油に代表されるように、品質規格の高度化が進む中で、特に低温時の粘度上昇も低く抑えるような（低温特性に優れる）粘度指数向上剤用のポリマーが求められている。潤滑油用途において、より優れた低温特性を得るために、ポリマー濃度をできるだけ低く抑えることが有効であり、また、経済性の面でも有利であることなどから、できるだけ高分子量のポリマーを用いる方法が知られている。しかしながら、分子量を高くして添加量を減らすと、せん断安定性が悪化するという問題がある。

また、一般的潤滑油には、パラフィン系鉱油が用いられており、このパラフィン系鉱油は、1～5%のパラフィンワックス成分を含有している。このパラ

5 フィンワックスは低温時に板状結晶を形成し、さらに油分を吸収して三次元的網目構造となり、潤滑油全体の流動性を著しく低下させる。流動点降下剤は、この板状結晶を不定形化させて流動性を改善させるために併用される。しかしながら、流動点降下剤の効果は潤滑油基剤の種類により大きく異なるため、各基剤に適したものを見出す必要がある。

自動車用・産業用のエンジン油、ギヤー油（ATFを含む）、油圧油などの用途では、新規格設定に伴う要求性能の高度化および環境規制強化に対応するため、従来から潤滑油基剤として広く使用されているグループ（i）オイルに代わり、グループ（ii）または（iii）オイルのような高度に精製された潤滑油基剤の使用率が高まっている。特にエンジン油用途では、主要規格項目の一つであるミニロータリー低温粘度（オイルのポンピング特性のパラメータ）の上昇が大きな問題となっている。本発明者らは、高分子量のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体は、低温特性および経済性の優れた潤滑油の粘度指数向上剤として好適であるが、分子量が高くなり過ぎると潤滑油基剤への溶解性が低下し、低温特性が悪化する傾向があること、および高度に精製された潤滑油基剤を使用すると高分子量エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体の溶解性が更に低下する傾向にあることを見出した。

20 本発明者らは、このような状況において鋭意研究の結果、エチレン含量、分子量、分子量分布、融点が特定の範囲にあるエチレン・プロピレン共重合体である粘度指数向上剤と、必要に応じて流動点降下剤を使用することにより、上記のような問題を解決することを見出して、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は、自動車用・産業用エンジン油、ギヤー油、ショックアブソーバー油、油圧油などとして低温粘度特性および増粘性に優れた潤滑油組成物および該組成物からなる内燃機関用潤滑油を提供することを目的としてい

る。

#### 発明の開示

本発明に係る潤滑油組成物（AA）は、100°Cにおける動粘度が1～50 mm<sup>2</sup>/sで、かつ粘度指数が80以上の潤滑油基剤（A）80～99重量%と、下記（B1）～（B4）の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体（B）1～20重量%とを含有することを特徴としている；

（B1）エチレン含量が30～75重量%の範囲にある

（B2）極限粘度 [ $\eta$ ] が1.3～2.0 dl/gの範囲にある

（B3）M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>が2.4以下である

（B4）DSCで測定した融点が30°C以下である。

本発明に係る潤滑油組成物（AA）は、前記潤滑油基剤（A）が、下記（A1）～（A3）の特性を有する鉱物油であるかまたはポリα-オレフィンであることが好ましい；

（A1）粘度指数が80以上である

（A2）飽和炭化水素分が90容量%以上である

（A3）硫黄分が0.03重量%以下である。

本発明に係る潤滑油組成物（BB）は、100°Cにおける動粘度が1～50 mm<sup>2</sup>/sで、かつ粘度指数が80以上の潤滑油基剤（A）を92～99.85重量%と、下記（B1）～（B4）の特徴を有するエチレン・プロピレン共重合体（B）を0.1～5重量%と、流動点降下剤（C）を0.05～3重量%とからなることを特徴としている；

（B1）エチレン含量が30～75重量%の範囲にあること

（B2）極限粘度 [ $\eta$ ] が1.3～2.0 dl/gの範囲にあること

（B3）M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>が2.4以下であること

## (B 4) D S C で測定した融点が 30 °C 以下であること

本発明では、前記流動点降下剤 (C) が、D S C で測定した融点が -13 °C 以下であることが好ましい。

本発明に係る内燃機関用潤滑油は、前記潤滑油組成物 (B B) からなること  
5 を特徴としている。

## 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係る潤滑油組成物および内燃機関用潤滑油について具体的に説明する。

本発明に係る潤滑油組成物 (A A) は、潤滑油基剤 (A) と、エチレン・プロピレン共重合体 (B) とからなることを特徴とし、潤滑油組成物 (B B) は、潤滑油基剤 (A) と、エチレン・プロピレン共重合体 (B) と、流動点降下剤 (C) とからなること特徴としている。

まず、本発明に係る潤滑油組成物に含まれる各成分について説明する。

## (潤滑油基剤 (A))

15 本発明で使用される潤滑油基剤 (A) としては、鉱物油、およびポリ- $\alpha$ -オレフィン、ポリオールエステル、ジエステル等の合成油が挙げられる。

鉱物油は一般に脱ワックス等の精製工程を経て用いられ、精製の仕方により幾つかの等級があり、本等級は A P I (米国石油協会) 分類で規定される。表 1 に各グループに分類される潤滑油基剤の特性を示す。

表 1

グループ	種類	粘度指数*1	飽和炭化水素分*2 (容量%)	硫黄分*3 (重量%)
(i)*4	鉱物油	80～120	<90	>0.03
(ii)	鉱物油	80～120	≥90	≤0.03
(iii)	鉱物油	≥120	≥90	≤0.03
(iv)	ポリ－α－オレフィン			
(v)	上記以外の潤滑油基剤			

\*1 : ASTM D445 (JIS K2283) に準じて測定

\*2 : ASTM D3238 に準じて測定

\*3 : ASTM D4294 (JIS K2541) に準じて測定

5 \*4 : 飽和炭化水素分が 90 (容量%) 未満でかつ硫黄分が 0.03 (重量%) 未満または飽和炭化水素分が 90 (容量%) 以上でかつ硫黄分が 0.03 (重量%) を超える鉱物油のグループ(i)に含まれる。

表 1 におけるポリ－α－オレフィンは、炭素数 10 以上の α－オレフィンを少なくとも原料モノマーとして重合して得られる炭化水素ポリマーであって、  
10 例えばデセン－1 を重合して得られるポリデセンなどが例示される。

本発明で使用される潤滑油基剤 (A) としての鉱物油は、精製度の高い等級であるグループ (i) ～グループ (iv) が好ましく、すなわち 100°C における動粘度が 1 ～ 50 mm<sup>2</sup>/s で、かつ粘度指数が 80 以上の鉱物油またはポリ α－オレフィンが好ましく、精製度の高い等級であるグループ (ii) またはグループ (iii) に属する鉱物油またはグループ (iv) に属するポリ α－オレフィンがさらに好ましい。なお、鉱物油は、20 重量% 以下の割合で他の鉱物油、ポリ・α－オレフィン、ポリオールエステル、ジエステル等の合成油を含有してもよい。

20 本発明では、潤滑油基剤 (A) として下記 (A 1) ～ (A 3) の特性を有する鉱物油またはポリ α－オレフィンが好ましい。これらの潤滑油基剤の中でも下記 (A 1) ～ (A 3) の特性を有する鉱物油が特に好ましい。

(A 1) 粘度指数が 80 以上

(A 2) 飽和炭化水素分が 90 容量% 以上

(A 3) 硫黄分が 0.03 重量% 以下

ここで粘度指数、飽和炭化水素分、硫黄分は以下の方法で測定される。

5 粘度指数 : ASTM D445 (JIS K2283) に準じて測定

飽和炭化水素分 : ASTM D3238 に準じて測定

硫黄分 : ASTM D4294 (JIS K2541) に準じて測定

(エチレン・プロピレン共重合体 (B))

本発明で使用されるエチレン・プロピレン共重合体 (B) は、粘度指数改良

10 用のポリマーである。

エチレン・プロピレン共重合体 (B) は、本発明の目的を損なわない範囲で環状オレフィン、ポリエンから選ばれる少なくとも 1 種のモノマー（以下「他のモノマー」ということがある）から導かれる繰り返し単位を、例えば、5 重量% 以下、好ましくは 1 重量% 以下の割合で含有してもよい。

15 なお、本発明はポリエンを含まないことが 1 つの好ましい態様である。この場合、特に耐熱性に優れている。実質的にエチレンとプロピレンのみからなっていることも好ましい。

このようなエチレン・プロピレン共重合体 (B) は、下記 (B 1)、(B 2)、(B 3) および (B 4) の特性を有している。

20 (B 1) エチレン含量；

エチレン・プロピレン共重合体 (B) のエチレン含量は、通常 30 ~ 75 重量%、好ましくは 40 ~ 60 重量%、特に好ましくは 42 ~ 52 重量% にある。

エチレン・プロピレン共重合体 (B) のエチレン含量は、「高分子分析ハンドブック」（日本分化学会、高分子分析研究懇談会編、紀伊国屋書店発行）に

記載の方法に従って  $^{13}\text{C}$  - NMR で測定される。

エチレン・プロピレン共重合体 (B) のエチレン含量が上記範囲内にあると低温特性と剪断安定性のバランスのとれた性能が得られる。

(B 2) 極限粘度  $[\eta]$  (dL/g) ;

5 エチレン・プロピレン共重合体 (B) は、極限粘度  $[\eta]$  が 1.3 ~ 2.0 dL/g、好ましくは 1.4 ~ 1.9 dL/g、特に好ましくは 1.5 ~ 1.8 dL/g の範囲にある。

エチレン・プロピレン共重合体 (B) の極限粘度  $[\eta]$  は、135°C、デカリン中で測定される。

10 極限粘度  $[\eta]$  が上記範囲内にあるエチレン・プロピレン共重合体 (B) を含有する潤滑油組成物は、低温特性と増粘性のバランスは特に優れる。また、極限粘度  $[\eta]$  が上記範囲内であれば、特に低温-低せん断速度条件下で極めて低い粘度を有し、潤滑油ポンプのポンピング特性に優れ、低省燃費にも寄与できる。

15 (B 3) 分子量分布；

エチレン・プロピレン共重合体 (B) は、分子量分布を示す指標である  $M_w/M_n$  ( $M_w$  : 重量平均分子量、 $M_n$  : 数平均分子量) が 2.4 以下、好ましくは 1 ~ 2.2 の範囲にある。

20 エチレン・プロピレン共重合体 (B) の  $M_w/M_n$  は、GPC (ゲルパーミエーションクロマトグラフ) を用い、オルトジクロロベンゼン溶媒で、140 °C で測定される。

分子量分布は 2.4 を超えると潤滑油のせん断安定性が低下する。

(B 4) 融点 ( $T_m$ ) ;

エチレン・プロピレン共重合体 (B) の融点は、30°C 以下、好ましくは

0 °C以下、さらに好ましくは−30 °C以下である。

エチレン・プロピレン共重合体（B）の融点は、示差走査型熱量計（DSC）を用いて測定される。具体的には試料約5 mgをアルミパンに詰めて200 °Cまで昇温し、200 °Cで5分間保持した後、10 °C/分で−40 °Cまで冷却し、−40 °Cで5分保持した後、10 °C/分で昇温する際の吸熱曲線から求める。

融点はエチレン・プロピレン共重合体（B）と流動点降下剤（C）との相互作用の目安で、流動点降下剤（C）の融点（−5～+10 °C）付近のエチレンシーケンスをできるだけ含まないようにすることが、相互作用を防止するため10に重要である。

本発明で使用されるエチレン・プロピレン共重合体（B）は、バナジウム、ジルコニウム、チタニウムなどの遷移金属化合物と、有機アルミニウム化合物（有機アルミニウムオキシ化合物）および／またはイオン化イオン性化合物とからなる触媒を使用して、エチレンとプロピレンとを共重合することにより製造することができる。このようなオレフイン重合用触媒としては、例えば国際公開第WO 00/34420号パンフレットに記載されている。

#### （流動点降下剤（C））

本発明で使用される流動点降下剤としては、有機酸エステル基を含有する高分子化合物が用いられ、有機酸エステル基を含有するビニル重合体が特に好適に用いられる。有機酸エステル基を含有するビニル重合体としては例えばメタクリル酸アルキルの（共）重合体、アクリル酸アルキルの（共）重合体、スマル酸アルキルの（共）重合体、マレイン酸アルキルの（共）重合体、アルキル化ナフタレン等が挙げられる。

このような流動点降下剤（C）は、下記（C1）の特性を有することが好ま

しい。

(C 1) 流動点降下剤 (C) の融点；

流動点降下剤 (C) の融点は、-13°C以下、好ましくは-15°C、さらに好ましくは-17°C以下である。

5 流動点降下剤 (C) の融点は、上記エチレン・プロピレン共重合体 (B) の融点の測定方法と同様の方法により求められる。

上記流動点降下剤 (C) はさらに、下記 (C 2) の特性を有することが好ましい。

10 (C 2) 流動点降下剤 (C) の分子量 (ポリスチレン換算重量平均分子量：  
M<sub>w</sub>) ；

流動点降下剤 (C) の重量平均分子量は、20,000～400,000、好ましくは30,000～300,000、より好ましくは40,000～200,000の範囲にある。

15 流動点降下剤 (C) の重量平均分子量はGPC (ゲルパーキューションクロマトグラフィー) を用い、テトラフロロフラン溶媒で、40°Cで測定される。

(潤滑油組成物 (AA))

本発明に係る潤滑油組成物 (AA) は、上記潤滑油基剤 (A) と上記エチレン・プロピレン共重合体 (B) とからなり、潤滑油基剤 (A) を80～99重量%、好ましくは85～95重量%、エチレン・プロピレン共重合体 (B) を1～20重量%、好ましくは5～15重量%の割合で含有している。ここで (A) と (B) の合計は100重量%である。

このような潤滑油組成物は、温度依存性が小さく低温特性に優れる。この潤滑油組成物は、そのまま使用することができ、またこの潤滑油組成物にさらに潤滑油基剤、流動点降下剤などを配合して例えば下記に説明する (BB) のよ

うな潤滑油組成物として、各種の潤滑油用途に使用することもできる。また上記潤滑油基剤（A）以外の潤滑油基材などを配合しても良い。また潤滑油組成物（AA）にはさらに必要により後述するような流動点降下剤、酸化防止剤、清浄分散剤、極圧剤、消泡剤、錆び止め剤、腐食防止剤等の添加剤を適宜配合することができる。  
5

（潤滑油組成物（BB））

本発明に係る潤滑油組成物（BB）は、上記潤滑油基剤（A）と、上記エチレン・プロピレン共重合体（B）と、上記流動点降下剤（C）とからなり、潤滑油基剤（A）が92～99.85重量%、好ましくは95～99.7重量%、  
10 更に好ましくは97～99.5重量%、エチレン・プロピレン共重合体（B）が0.1～5重量%、好ましくは0.2～3重量%、更に好ましくは0.4～2重量%、流動点降下剤（C）が0.05～3重量%、好ましくは0.1～2重量%、さらに好ましくは0.1～1重量%の割合で含有されている。なお（A）と（B）と（C）の合計は100重量%である。

15 潤滑油組成物（AA）に加えられる潤滑油基剤は潤滑油組成物（AA）中の潤滑油基剤と同じであっても異なってもよいが、上記（A1）～（A3）の特性を有するものが好ましい。

このような潤滑油基剤（A）とエチレン・プロピレン共重合体（B）と流動点降下剤（C）とからなる潤滑油組成物（BB）は、温度依存性が小さく低温特性に優れ、特に低温一低せん断速度条件下で低い粘度を有する。  
20

（添加剤）

本発明の潤滑油組成物は、上記潤滑油基剤（A）およびエチレン・プロピレン共重合体（B）、必要に応じて流動点降下剤（C）からなるものであるが、必要により酸化防止剤、清浄分散剤、極圧剤、消泡剤、錆び止め剤、腐食防止

剤等の添加剤を適宜配合することができる。

ここで、酸化防止剤として具体的には、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール等のフェノール系酸化防止剤；ジオクチルジフェニルアミン等のアミン系酸化防止剤などが挙げられる。また清浄分散剤としては、カルシウムスル5 フォネート、メグネシウムスルフォネート等のスルフォネート系；フィネート；サリチレート；コハク酸イミド；ベンジルアミンなどが挙げられる。

極圧剤としては、硫化油脂、硫化オレフィン、スルフィド類、リン酸エステル、亜リン酸エステル、リン酸エステルアミン塩、亜リン酸エステルアミン塩などが挙げられる。

10 消泡剤としては、ジメチルシリコキサン、シリカゲル分散体等のシリコン系消泡剤；アルコール、エステル系消泡剤などが挙げられる。

錆止め剤としては、カルボン酸、カルボン酸塩、エステル、リン酸などが挙げられる。また、腐食防止剤としては、ベンゾトリアゾールとその誘導体、チアゾール系化合物などが挙げられる。

#### 15 (調製方法)

本発明に係る潤滑油組成物（AA）および（BB）は、従来公知の方法で、潤滑油基剤（A）にエチレン・プロピレン共重合体（B）、必要に応じて流動点降下剤（C）、さらに必要に応じてその他の添加剤を混合または溶解することにより調製することができる。

20 潤滑油組成物（BB）は、潤滑油組成物（AA）に流動点降下剤（C）と必要によりさらに潤滑油基剤を加えることによっても得られる。この場合、潤滑油組成物（AA）に加えられる潤滑油基剤は、潤滑油組成物（AA）中の潤滑油基剤（A）と同じであっても異なってもよいが、上記（A1）～（A3）の特性を有するものが好ましい。

## (効果)

本発明の潤滑油組成物は、S A E 粘度規格で規定される低温・低せん断速度条件下で低い粘度を有し、ポンピング特性に優れるので特にエンジン油等の内燃機関用潤滑油として有用である。

## 5 実施例

以下、実施例に基づいて本発明を具体的に説明するが、実施例における各種物性は以下のようにして測定した。

エチレン含量；

日本電子 LA500 型核磁気共鳴装置を用い、オルトジクロルベンゼンとベンゼン-d<sub>6</sub>との混合溶媒（オルトジクロルベンゼン／ベンゼン-d<sub>6</sub> = 3 / 1 ~ 4 / 1 (体積比)）中、120°C、パルス幅45°パルス、パルス繰り返し時間5.5秒で測定した。

極限粘度 [η]；

135°C、デカリソ中で測定した。

15 M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>；

G P C (ゲルパーミエーションクロマトグラフィー) を用い、オルトジクロロベンゼン溶媒で、140°Cで測定した。

100°Cでの動粘度 (K.V.)；

ASTM D 445に基づいて測定を行った。尚、本実施例では試料油の K.V. が 20 11 mm<sup>2</sup>/s となるように調整した。

Mini-Rotary Viscometer (MRV) 粘度；

ASTM D 3829、D4684に基づいて-35°Cで測定を行った。MRV はオイルポンプが低温で正常なポンピングを行うための評価に用いられ、値が小さい程、低温特性に優れることを示す。

**Cold Cranking Simulator (CCS) 粘度；**

ASTM D 2602に基づいて−25°Cおよび−30°Cで測定を行った。CCS粘度はクランク軸における低温での摺動性（始動性）の評価に用いられ、値が小さい程、低温特性に優れることを示す。

**5 Shear Stability Index (SSI) ；**

ASTM D 3945に基づいて測定を行った。SSIは潤滑油中の共重合体成分が金属摺動部でせん断を受け、分子鎖が切断することによる動粘度の損失の尺度であり、SSIが大きい値である程、損失が大きいことを示す。

(重合例 1～4)

10 充分窒素置換した容量2リットルの攪拌翼付連続重合反応器に、脱水精製したヘキサン1リットルを張り、8.0 mmol l / l に調整したエチルアルミニウムセスキクロリド (Al (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>1.5</sub> · Cl<sub>1.5</sub>) のヘキサン溶液を500 ml / h の量で連続的に1時間供給した後、更に触媒として0.8 mmol l / l に調整したVO (OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub> のヘキサン溶液を500 ml / h の量で、  
15 ヘキサンを500 ml / h の量で連続的に供給した。一方重合器上部から、重合液器内の重合液が常に1リットルになるように重合液を連続的に抜き出した。次にバブリング管を用いてエチレンを180 l / h の量で、プロピレンを120 l / h の量で、水素を1.5～5.5 l / h の量で供給した。共重合反応は、重合器外部に取り付けられたジャケットに冷媒を循環させることにより15°C  
20 で行った。

上記条件で反応を行うと、エチレン・プロピレン共重合体を含む重合溶液が得られた。得られた重合溶液は、塩酸で脱灰した後に、大量のメタノールに投入して、エチレン・プロピレン共重合体を析出させた後、130°Cで24時間減圧乾燥を行った。得られたポリマーの性状を表2に示す。

表 2

	重合例1	重合例2	重合例3	重合例4
重合条件				
エチレン (1/h)	180	180	180	180
プロピレン (1/h)	120	120	120	120
水素 (1/h)	5.5	3.5	2.0	1.5
ポリマー性状				
エチレン含量 (wt%)	49	49	50	51
[ $\eta$ ] (dL/g)	1.20	1.45	1.84	2.18
Mw/Mn	2.0	1.9	2.0	2.1
融点 (°C)	<-40 *	<-40	<-40	<-40

\* : -40°C以上に融点が確認されない。

### (重合例5)

充分窒素置換した容量2リットルの攪拌翼付ステンレススチール製オートクレーブに、23°Cでヘプタン900mLを装入した。このオートクレーブに、攪拌翼を回し、かつ氷冷しながらプロピレン13N1、水素100mLを装入した。次にオートクレーブを70°Cまで加熱し、更に、全圧が6KGとなるようエチレンで加圧した。オートクレーブの内圧が6KGになった所で、トリイソブチルアルミニウムの1.0mmol/mLへキサン溶液1.0mLを窒素で圧入した。続いて、予め調製しておいた、トリフェニルカルベニウム(テトラキスペンタフルオロフェニル)ボレートをB換算で0.02mM、[ジメチル(t-ブチルアミド)(テトラメチル- $\eta^5$ -シクロペンタジエニル)シラン]チタンジクロリドを0.0005mmolの量で含むトルエン溶液3mLを、窒素でオートクレーブに圧入し重合を開始した。その後、5分間、オートクレーブを内温70°Cになるように温度調製し、かつ圧力が6kgとなるように直接的にエチレンの供給を行った。重合開始5分後、オートクレーブにポンプでメタノール5mLを装入し重合を停止し、オートクレーブを大気圧まで脱圧し

た。反応溶液に 3 リットルのメタノールを攪拌しながら注いだ。得られた溶媒を含む重合体を 130 °C、13 時間、600 torr で乾燥して 31 g のエチレン・プロピレン共重合体を得た。得られたポリマーのエチレン含量は 47 重量%、 $[\eta]$  は 1.60 dL/g、M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub> は 2.1、融点は -40 °C 未満 (-40 °C 以上に融点が確認されない) であった。

5 (実施例 1)

潤滑油基剤 (A) (ベース油) として、グループ-(ii) に分類される 10 0 °C の動粘度が 4.60 mm<sup>2</sup>/s、粘度指数が 114、飽和炭化水素分が 99 容量%、硫黄分が 0.001 重量% 以下の鉱物油 120 ニュートラル (商標、ESSO 社製) を 87.85 重量%、粘度指数向上剤として重合例 2 で得られたエチレン・プロピレン共重合体 (B) を 0.85 重量%、流動点降下剤 (C) としてアクループ 146 (商標、三洋化成社製) を 0.3 重量%、清浄分散剤 LZ 20003C (商標、ルブリゾール社製) を 11.0 重量% 用いて、潤滑油性能評価を行った。結果を表 3 に示す。

15 (実施例 2)

粘度指数向上剤 (B) として重合例 5 で得られたエチレン・プロピレン共重合体を 0.76 重量% 用いる以外は実施例 1 と同様に行った。結果を表 3 に示す。

(実施例 3)

20 粘度指数向上剤 (B) として重合例 3 で得られたエチレン・プロピレン共重合体を 0.70 重量% 用いる以外は実施例 1 と同様に行った。結果を表 3 に示す。

表 3

	実施例 1	実施例 2	実施例 3
配合したエチレン・プロピレン共重合体(B)	重合例 2	重合例 5	重合例 3
配合 (重量%)			
潤滑油基剤(A) (ベース油)	87.85	87.94	88.00
エチレン・プロピレン共重合体(B) *1	0.85	0.76	0.70
流動点降下剤(C) アクリュープ 146 *2	0.30	0.30	0.30
清浄分散剤 (LZ 20003C)	11.00	11.00	11.00
*1 エチレン・プロピレン共重合体(B)の[η](dl/g)	1.45	1.60	1.84
*2 流動点降下剤(C)の融点 (°C)	-19.0	-19.0	-19.0
*2 流動点降下剤(C)の重量平均分子量(Mw)	56100	56100	56100
潤滑油性能			
動粘度@100°C (mm <sup>2</sup> /s)	11.02	10.96	11.00
CCS粘度@-25°C (mPa·s)	3,090	3,050	3,010
CCS粘度@-30°C (mPa·s)	6,200	6,120	6,060
MR粘度 @-35°C (mPa·s)	32,500	29,600	30,650
SSI	41	44	46

@xxx°Cはxxx°Cにおける測定結果を示す。以下同じ。

#### (実施例 4)

5 潤滑油基剤(A) (ベース油)として、鉱物油120ニュートラル(商標、ESSO社製)を87.37重量%、粘度指数向上剤(B)として重合例2で得られたエチレン・プロピレン共重合体を0.83重量%、流動点降下剤(C)としてアクリュープ146(商標、三洋化成社製)を0.3重量%、清浄分散剤LZ20003C(商標、ルブリゾール社製)を11.5重量%用いて、潤滑油性能評価を行った。結果を表4に示す。

#### (実施例 5)

鉱物油120ニュートラル(商標、ESSO社製)を87.46重量%用い、

粘度指数向上剤（B）として重合例5で得られたエチレン・プロピレン共重合体を0.74重量%用いる以外は実施例4と同様に行った。結果を表4に示す。

（実施例6）

鉱物油120ニュートラル（商標、ESSO社製）を87.52重量%用い、

5 粘度指数向上剤（B）として重合例3で得られたエチレン・プロピレン共重合体を0.68重量%用いる以外は実施例4と同様に行った。結果を表4に示す。

（実施例7）

流動点降下剤（C）としてアクループ136（商標、三洋化成社製）を用いる以外は実施例4と同様に行った。結果を表3に示す。

10 （実施例8）

流動点降下剤（C）としてアクループ136（商標、三洋化成社製）を用いる以外は実施例5と同様に行った。結果を表4に示す。

（実施例9）

15 流動点降下剤（C）としてアクループ136（商標、三洋化成社製）を用いる以外は実施例6と同様に行った。結果を表4に示す。

表 4

	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9
配合したエチレン・プロピレン共重合体(B)	重合例 2	重合例 5	重合例 3	重合例 2	重合例 5	重合例 3
配合 (重量%)						
潤滑油基剤(A) (ベース油)	87.37	87.46	87.52	87.37	87.46	87.52
エチレン・プロピレン共重合体(B) *1	0.83	0.74	0.68	0.83	0.74	0.68
流動点降下剤(C) アクリル* 146 *2	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
流動点降下剤(C) アクリル* 136 *2	11.50	11.50	11.50	11.50	11.50	11.50
清浄分散剤 (LZ20003C)						
*1 エチレン・プロピレン共重合体(B) の [η] (dL/g)	1.45	1.60	1.84	1.45	1.60	1.84
*2 流動点降下剤(C) の融点 (°C)	-19.0	-19.0	-19.0	-18.1	-18.1	-18.1
*2 流動点降下剤(C) の重量平均分子量(Mw)	56100	56100	56100	100200	100200	100200
潤滑油性能						
動粘度 @ 100°C (mm <sup>2</sup> /s)	10.88	10.79	10.72	10.90	10.91	10.76
C C S 粘度 @ -25°C (mPa·s)	3060	3040	3040	3050	3040	3010
M R 粘度 @ -35°C (mPa·s)	29170	28280	28820	28640	28950	29060
S S I	41	44	46	42	45	46

(比較例 1)

鉱物油 120 ニュートラル（商標、ESSO 社製）を 87.70 重量% 用い、粘度指数向上剤（B）として重合例 1 で得られたエチレン・プロピレン共重合

体を 1.00 重量% 用いる以外は実施例 4 と同様に行った。結果を表 5 に示す。

(比較例 2)

鉱物油 120 ニュートラル（商標、ESSO 社製）を 88.09 重量% 用い、粘度指数向上剤として重合例 4 で得られたエチレン・プロピレン共重合体 5 (B) を 0.61 重量% 用いる以外は実施例 1 と同様に行った。結果を表 5 に示す。

表 5

	比較例 1	比較例 2
配合したエチレン・プロピレン共重合体 (B)	重合例 1	重合例 4
配合 (重量%)		
潤滑油基剤 (A) (ベース油)	87.70	88.09
エチレン・プロピレン共重合体 (B)	1.00	0.61
(共重合体 (B) の $[\eta]$ (dL/g))	1.20	2.18
流動点降下剤 (C) アクリーブ 146	0.30	0.30
清浄分散剤 (LZ 20003C)	11.00	11.00
潤滑油性能		
動粘度 @ 100°C (mm <sup>2</sup> /s)	10.92	10.98
C C S 粘度 @ -25°C (mPa·s)	3,120	2,950
C C S 粘度 @ -30°C (mPa·s)	6,280	6,010
MR 粘度 @ -35°C (mPa·s)	52,500	48,600
S S I	30	57

(比較例 3)

潤滑油基剤 (A) (ベース油) として、グループ(ii)に分類される 100°C 動粘度が 4.60 mm<sup>2</sup>/s の鉱物油 (ESSO 社製) を 87.22 重量%、粘度指数向上剤 (B) として重合例 1 で得られたエチレン・プロピレン共重合体を 0.98 重量%、流動点降下剤 (C) としてアクリーブ 146 (商標、三洋化成社製) を 0.3 重量%、清浄分散剤 LZ 20003C (商標、ルブリゾール社製) を 11.5 重量% 用いて、潤滑油性能評価を行った。結果を表 6 に示す。

## (比較例 4)

100°C動粘度が $4.60 \text{ mm}^2/\text{s}$ の鉱物油(ESSO 社製)を87.61重量%、粘度指数向上剤(B)として重合例4で得られたエチレン・プロピレン共重合体を0.59重量%用いる以外は比較例3と同様に行った。結果を表6に示す。

## (比較例 5)

流動点降下剤(C)としてアクループ136(商標、三洋化成社製)を用いる以外は比較例3と同様に行った。結果を表6に示す。

## (比較例 6)

10 流動点降下剤(C)としてアクループ136(商標、三洋化成社製)を用いる以外は比較例4と同様に行った。結果を表6に示す。

表 6

	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
配合したエチレン・プロピレン共重合体(B)	重合例1	重合例4	重合例1	重合例4
配合(重量%)				
潤滑油基剤(A)(ベース油)	87.22	87.61	87.22	87.61
エチレン・プロピレン共重合体(B) *1	0.98	0.59	0.98	0.59
流動点降下剤(C) アクリープ146 *2	0.30	0.30		
流動点降下剤(C) アクリープ136 *2			0.30	0.30
清浄分散剤(LZ20003C)	11.50	11.50	11.50	11.50
*1 エチレン・プロピレン共重合体(B)の[η](dl/g)	1.20	2.18	1.20	2.18
*2 流動点降下剤(C)の融点(°C)	-19.0	-19.0	-18.1	-18.1
*2 流動点降下剤(C)の重量平均分子量(Mw)	56100	56100	100200	100200
潤滑油性能				
動粘度@100°C (mm <sup>2</sup> /s)	10.79	10.88	10.85	10.91
C C S 粘度@-25°C (mPa·s)	3120	2950	3150	2930
MR粘度 @-35°C (mPa·s)	52870	48650	54330	51740
S S I	30	57	30	57

## (実施例 1 0)

流動点降下剤 (C) としてアクループ 133 (商標、三洋化成社製) を用いる以外は実施例 4 と同様に行った。結果を表 7 に示す。

## (実施例 1 1)

5 流動点降下剤 (C) としてアクループ 133 (商標、三洋化成社製) を用いる以外は実施例 5 と同様に行った。結果を表 7 に示す。

## (実施例 1 2)

流動点降下剤 (C) としてアクループ 133 (商標、三洋化成社製) を用いる以外は実施例 6 と同様に行った。結果を表 7 に示す。

10 (実施例 1 3)

流動点降下剤 (C) としてビスコプレックス 1-156 (商標、ROHMAX 社  
製) を用いる以外は実施例 4 と同様に行った。結果を表 7 に示す。

## (実施例 1 4)

15 流動点降下剤 (C) としてビスコプレックス 1-156 (商標、ROHMAX 社  
製) を用いる以外は実施例 5 と同様に行った。結果を表 7 に示す。

## (実施例 1 5)

流動点降下剤 (C) としてビスコプレックス 1-156 (商標、ROHMAX 社  
製) を用いる以外は実施例 6 と同様に行った。結果を表 7 に示す。

表 7

	実施例10 重合例2	実施例11 重合例5	実施例12 重合例3	実施例13 重合例2	実施例14 重合例5	実施例15 重合例3
配合 (重量%)						
潤滑油基剤(A) (ベース油)	87.37	87.46	87.52	87.37	87.46	87.52
エチレン・プロピレン共重合体(B) *1	0.83	0.74	0.68	0.83	0.74	0.68
流動点降下剤(C) アクリル 133 *2	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
流動点降下剤(C) ポリソルベクタ 1-156 *2						
清浄分散剤 (LZ20003C)	11.50	11.50	11.50	11.50	11.50	11.50
*1 エチレン・プロピレン共重合体(B)の[η] (dl/g)	1.45	1.60	1.84	1.45	1.60	1.84
*2 流動点降下剤(C)の融点 (°C)	-11.4	-11.4	-11.4	-8.7	-8.7	-8.7
*2 流動点降下剤(C)の重量平均分子量(Mw)	418000	418000	418000	75600	75600	75600
潤滑油性能						
動粘度@100°C (mm <sup>2</sup> /s)	10.91	10.88	10.82	10.94	10.80	10.77
CCS粘度@-25°C (mPa·s)	3090	3060	3050	3080	3060	3010
MR粘度 @-35°C (mPa·s)	42870	41650	42330	44740	43880	44180
SSI	42	45	47	42	44	46

## 請求の範囲

1.

100°Cにおける動粘度が $1 \sim 50 \text{ mm}^2/\text{s}$ で、かつ粘度指数が80以上の潤滑油基剤(A) 80~99重量%と、下記(B1)~(B4)の特性を有するエチレン・プロピレン共重合体(B) 1~20重量%とからなることを特徴とする潤滑油組成物(AA)；

(B1) エチレン含量が30~75重量%の範囲にある

(B2) 極限粘度 $[\eta]$ が $1.3 \sim 2.0 \text{ dl/g}$ の範囲にある

(B3)  $M_w/M_n$ が2.4以下である

10 (B4) DSCで測定した融点が30°C以下である。

2.

前記潤滑油基剤(A)が、下記(A1)~(A3)の特性を有する鉱物油であるかまたはポリ $\alpha$ -オレフィンであることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の潤滑油組成物(AA)；

15 (A1) 粘度指数が80以上である

(A2) 飽和炭化水素分が90容量%以上である

(A3) 硫黄分が0.03重量%以下である。

3.

100°Cにおける動粘度が $1 \sim 50 \text{ mm}^2/\text{s}$ で、かつ粘度指数が80以上の潤滑油基剤(A)を92~99.85重量%と、下記(B1)~(B4)の特徴を有するエチレン・プロピレン共重合体(B)を0.1~5重量%と、流动点降下剤(C)を0.05~3重量%とからなることを特徴とする潤滑油組成物(BB)；

(B1) エチレン含量が30~75重量%の範囲にあること

(B 2) 極限粘度  $[\eta]$  が  $1.3 \sim 2.0 \text{ dl/g}$  の範囲にあること

(B 3)  $M_w/M_n$  が  $2.4$  以下であること

(B 4) DSCで測定した融点が  $30^\circ\text{C}$  以下であること

4.

5 前記流動点降下剤 (C) が、DSCで測定した融点が  $-13^\circ\text{C}$  以下であることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の潤滑油組成物 (B B)。

5.

請求の範囲第3項または第4項に記載の潤滑油組成物 (B B) からなることを特徴とする内燃機関用潤滑油。

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No. PCT/JP03/14311
---

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 Int.Cl<sup>7</sup> C10M143/04, 169/04//C08F210/16(C10M169/04, 101:02, 107:02,  
 143:04)C10N20:00, 20:02, 20:04, 30:02, 40:25

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C10M143/00-143/18, 101/02, 107/02-107/18, 169/04,  
 C10N20:00-20:04, 30:02, 40:25-40:28, C08F210/16-210/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
 Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004  
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 00/60032 A1 (Mitsukawa Kogyo Kabushiki Kaisha, et al.), 12 October, 2000 (12.10.00), & BR 200009424 A & CN 1346398 A & EP 1178102 A1 & KR 2001108416 A & US 2002/0035044 A1	1-5
Y	WO 00/34420 A1 (Mitsui Chemicals, Inc., et al.), 15 June, 2000 (15.06.00), & BR 9916013 A & CN 1329656 A & EP 1148115 A1 & KR 2001112228 A & US 2002/0055445 A1	1-5

Further documents are listed in the continuation of Box C.  See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E"	earlier document but published on or after the international filing date
"L"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&"	document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 09 February, 2004 (09.02.04)	Date of mailing of the international search report 24 February, 2004 (24.02.04)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP03/14311
---

## C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 632066 A1 (SPHERILENE S.R.I.), 04 January, 1995 (04.01.95), & AU 9461848 A & BR 9401058 A & CA 2123336 A1 & CN 1096304 A & DE 69411330 T2 & ES 2119014 T3 & FI 9402157 A & IL 109435 A & IT 1264482 B & JP 7-33825 A & MX 196885 A & NO 9401741 A & RU 2140426 C1 & US 6221992 B1 & US 6448351 B1	1-5
Y	EP 188103 A2 (EXXON RESEARCH AND ENGINEERING CO.), 23 July, 1986 (23.07.86), & AU 8551283 A & BR 8505553 A & CA 1263106 A & ES 8703493 A1 & JP 61-143496 A & US 4575574 A	1-5
Y	GB 2047266 A (EXXON RESEARCH AND ENGINEERING CO.), 26 November, 1980 (26.11.80), & BE 882693 A & CA 1168223 A & DE 3013318 A1 & FR 2453889 A1 & IT 1147348 B & JP 55-149332 A & NL 8002092 A	1-5
Y	JP 7-150181 A (Mistui Sekiyu Kagaku Kabushiki Kaisha), 13 June, 1995 (13.06.95), (Family: none)	1-5

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP03/14311

## A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int.Cl. C10M 143/04, 169/04

//C08F 210/16 (C10M 169/04, 101:02, 107:02, 143:04)  
C10N 20:00, 20:02, 20:04, 30:02, 40:25

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int.Cl. C10M 143/00-143/18, 101/02, 107/02-107/18, 169/04  
C10N 20:00-20:04, 30:02, 40:25-40:28  
C08F 210/16-210/18

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2004年

日本国登録実用新案公報 1994-2004年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

## 国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	WO 00/60032 A1 (三井化学株式会社 外1名), 2000.10.12 &BR 200009424 A &CN 1346398 A &EP 1178102 A1 &KR 2001108416 A &US 2002/0035044 A1	1-5

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

09.02.2004

国際調査報告の発送日 24.2.2004

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

## 特許庁審査官(権限のある職員)

山本 昌広

4V 9280

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C(続き)	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	WO 00/34420 A1 (三井化学株式会社 外1名), 2000. 06. 15 &BR 9916013 A &CN 1329656 A &EP 1148115 A1 &KR 2001112228 A &US 2002/0055445 A1	1-5
Y	EP 632066 A1 (SPHERILENE S.R.I.), 1995. 01. 04 &AU 9461848 A &BR 9401058 A &CA 2123336 A1 &CN 1096304 A &DE 69411330 T2 &ES 2119014 T3 &FI 9402157 A &IL 109435 A &IT 1264482 B &JP 7-33825 A &MX 196885 A &NO 9401741 A &RU 2140426 C1 &US 6221992 B1 &US 6448351 B1	1-5
Y	EP 188103 A2 (EXXON RESEARCH AND ENGINEERING COMPANY), 1986. 07. 23 &AU 8551283 A &BR 8505553 A &CA 1263106 A &ES 8703493 A1 &JP 61-143496 A &US 4575574 A	1-5

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
Y	GB 2047266 A (EXXON RESEARCH AND ENGINEERING COMPANY), 1980. 11. 26 &BE 882693 A &CA 1168223 A &DE 3013318 A1 &FR 2453889 A1 &IT 1147348 B &JP 55-149332 A &NL 8002092 A	1-5
Y	JP 7-150181 A (三井石油化学工業株式会社), 1995. 06. 13 (ファミリーなし)	1-5